PUB-NO: JP02002134276A

DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 2002134276 A

TITLE: ORGANIC ELECTRIC FIELD LIGHT EMITTING DEVICE

PUBN-DATE: May 10, 2002

INVENTOR-INFORMATION:

NAME COUNTRY

ISHIBASHI, TADASHI ICHIMURA, MARI TAMURA, SHINICHIRO UEDA, NAOYUKI

INT-CL (IPC): H05B 33/14; C09K 11/06; H05B 33/22

### ABSTRACT:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic electric field light emitting device, which has high luminosity and stable red luminescence.

SOLUTION: A mixture containing at least one sort of aminostyryl compound expressed with the following formula [I] or [II] to at least 1 part of an organic layers 5, 5a, or 5b, which have a luminescence domain, is contained. Formula [I]: Y1-CH=CH-X1-CH=CH-Y2 Formula [II]: Y3-CH=CH-X2 However in the formula, X1 and X2 express aryl group, such as anthracene group, and Y1, Y2 and Y3 express arylamino group or the like.

COPYRIGHT: (C)2002, JPO

## (19)日本国特許庁(JP)

# (12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号 特開2002-134276

(P2002-134276A)

(43)公開日 平成14年5月10日(2002.5.10)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>		識別記号		FΙ				วี	7]}*(参考)
H05B	33/14			H05	В	33/14		В	3 K 0 0 7
C 0 9 K	11/06	6 1 5		C 0 9	K	11/06		615	
		6 2 5						6 2 5	
		6 4 5						6 4 5	
H05B	33/22			H 0 5	В	33/22		D	
			審査請求	未請求	請す	≷項の数36	OL	(全 31 頁)	最終頁に続く

(21)出願番号	特願2000-329902(P2000-329902)	(71) 出願人 000002185	
		ソニー株式会社	
(22)出顧日	平成12年10月30日(2000.10.30)	東京都品川区北品川6	5丁目7番35号
		(72)発明者 石橋 義	
		東京都品川区北品川6	5丁目7番35号 ソニ
		一株式会社内	
		(72)発明者 市村 眞理	
		東京都品川区北品川 6	5丁目7番35号 ソニ
		一株式会社内	
		(74)代理人 100076059	
		弁理士 逢坂 宏	

最終頁に続く

## (54) 【発明の名称】 有機電界発光素子

#### (57)【要約】

【課題】 高輝度かつ安定な赤色発光を有する有機電界 発光素子を提供すること。

【解決手段】 発光領域を有する有機層5、5a又は5bの少なくとも1部に下記一般式[I]又は[II]で表されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物が含まれている有機電界発光素子。

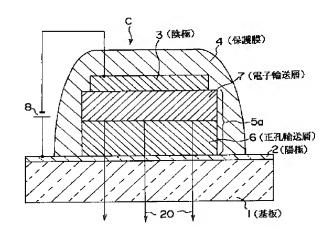
## 一般式 [ I ] :

 $Y^1$  - CH = CH -  $X^1$  - CH = CH -  $Y^2$ 

一般式[II]:

 $Y^3$  - CH= CH- $X^2$ 

[但し、前記一般式において、 $X^1$ 、 $X^2$ はアントラセン基等のアリール基、 $Y^1$ 、 $Y^2$ 、 $Y^3$ はアリールアミノ基などを表わす。]



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 発光領域を有する有機層が陽極と陰極との間に設けられている有機電界発光素子において、前記有機層の少なくとも1部が、下記一般式[I]又は[I]で表されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物からなることを特徴とする、有機電界発光素子。

## \*一般式[I]:

 $Y^1$  –CH=CH– $X^1$  –CH=CH– $Y^2$ 

一般式[II]:

Y3 -CH=CH-X2

[但し、前記一般式 [I] において、 $X^1$  は下記一般式  $(1) \sim (4)$  のいずれかで表される基であり、

(但し、前記一般式  $(1) \sim (4)$  中の $R^1 \sim R^8$ 、 $R^9 \sim R$  ※から選ばれた基でを  $1^6$ 、 $R^{17} \sim R^{24}$ 、及び $R^{25} \sim R^{32}$ のそれぞれにおいて、少な 20 異なっても良い。) くとも一つがハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、トリ また、前記一般式 [7] また、前記一般式 [7] にアルキル基から選ばれた基であり、その他は水素 [7] に [7]

※から選ばれた基である。また、それらが同一であっても 20 異なっても良い。)

また、前記一般式 [II] において、 $X^2$  は下記一般式  $(5) \sim (17)$  のいずれかで表される基であり、 【化2】

(但し、前記一般式(5)~(17)において、 $R^{33}$ ~ $R^{33}$ ~ $R^{34}$ 141は水素原子、又はハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基及びトリフルオロメチル基から選ばれた基であり、それらが同一であっても異なっても良い。)

また、前記一般式[I]及び[II]中のY1、Y2及びY3は水素\*

\*原子、置換基を有しても良いアルキル基、又は下記一般式(18)~(20)のいずれかで表される置換基を有しても良いアリール基から選ばれた基であり、それらが10同一であっても異なっても良い。

(但し、前記一般式(18)中のZ¹及びZ²は水素原子、置換基を有しても良いアルキル基、又は置換基を有しても良いアリール基から選ばれた基であり、それらが同一であっても異なっても良い。また、前記一般式(19)及び(20)において、R¹⁴²~R¹⁵8は水素原子、置換基を有しても良いアルキル基、置換基を有しても良いアリール基、置換基を有しても良いアリール基、置換基を有しても良いアリール基、置換基を有しても良いアリール基、置換基を有しても良いアリール基、置換基を有しても良いアリール基、置換基を有しても良いアリール表、の選挙を有しても良いアルコキシ基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基及びトリフルオロメチル基から選ばれた基であって、それらが同一であっても異なっても良い。)

【請求項2】 前記有機層が、ホール輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記有機層のうちの少なくとも電子輸送層が、前記一般式[I] 又は[II]で表されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層である、請求項1に記載の有機電界発光素子。

【請求項3】 前記有機層が、ホール輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記有機層のうちの少なくともホール輸送層が、前記一般式

[I] 又は[II] で表されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層である、請求項1に記載の有機電界発光素子。

【請求項4】 前記有機層が、ホール輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記ホール輸送層が、前記一般式[I]又は[II]で表されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であり、かつ前記電子輸送層が、前記一般式[I]又は[II]で表されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層である、請求項1に記載の有機電界発光素子。

【請求項5】 前記有機層が、ホール輸送層と発光層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、※50

※前記有機層のうちの少なくとも発光層が、前記一般式 の [I]又は[II]で表されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層である、請求項1に記載の有機電界発光素子。

【請求項6】 前記混合物における前記アミノスチリル 化合物の割合が10~100重量%である、請求項1に 記載の有機電界発光素子。

【請求項7】 発光領域を有する有機層が陽極と陰極との間に設けられている有機電界発光素子において、前記有機層の少なくとも1部が、下記構造式(21)-1~(21)-20で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物からなることを特徴とする、有機電界発光素子。

【化4】

40

(21)-19

【請求項8】 前記有機層が、ホール輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記有機層のうちの少なくとも電子輸送層が、前記構造式(21)-1~(21)-20で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層である、請求項7に記載の有機電界発光素子。

(21)-16

(21)-18

【請求項9】 前記有機層が、ホール輸送層と電子輸送 0で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を層とが積層された有機積層構造を有しており、前記有機 合んだ混合物層であり、かつ前記電子輸送層が、前記構層のうちの少なくともホール輸送層が、前記構造式(2<math>%50 造式(21)-1~(21)-20で示されるアミノス

※1)-1~(21)-20で示されるアミノスチリル化 合物の少なくとも1種を含んだ混合物層である、請求項 7に記載の有機電界発光素子。

(21)-20

(21)-17

【請求項10】 前記有機層が、ホール輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記ホール輸送層が、前記構造式  $(21)-1\sim(21)-2$ 0で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であり、かつ前記電子輸送層が、前記構造式  $(21)-1\sim(21)-2$ 0で示されるアミノス

(21)-4

(21)-6

(21)-13

チリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層である、請求項7に記載の有機電界発光素子。

【請求項11】 前記有機層が、ホール輸送層と発光層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記有機層のうちの少なくとも発光層が、前記構造式  $(21)-1\sim(21)-20$ で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層である、請求項7に記載の有機電界発光素子。

【請求項12】 前記混合物における前記アミノスチリル化合物の割合が10~100重量%である、請求項7 10に記載の有機電界発光素子。

【請求項13】 発光領域を有する有機層が陽極と陰極との間に設けられている有機電界発光素子において、前記有機層の少なくとも1部が、下記構造式(21)-1~(21)-20で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種と、600nm~700nmの範囲に発光極大を有する赤色発光色素とを含んだ混合物からなることを特徴とする、有機電界発光素子。

(21)-11

【化5】

(21)-12

$$H_3CO$$
 $H_3CO$ 
 $H_3CO$ 

【請求項14】 前記有機層が、ホール輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記有機層のうちの少なくとも電子輸送層が、前記構造式(21)-1~(21)-20で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層である、請求項13に記載の有機電界発光素子。

【請求項15】 前記有機層が、ホール輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記有機層のうちの少なくともホール輸送層が、前記構造式(21)-1~(21)-20で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層である、請求項13に記載の有機電界発光素子。

【請求項16】 前記有機層が、ホール輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記ホール輸送層が、前記構造式  $(21)-1\sim(21)-2$ 0で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であり、かつ前記電子輸送層が、前記構造式  $(21)-1\sim(21)-2$ 0で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層である、請求項13に記載の有機電界発光素子。

【請求項17】 前記有機層が、ホール輸送層と発光層 と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有してお \*40

\*り、前記有機層のうちの少なくとも発光層が、前記構造 20 式  $(21)-1\sim(21)-20$ で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層である、請求項13に記載の有機電界発光素子。

【請求項18】 前記混合物における前記アミノスチリル化合物の割合が10~100重量%である、請求項13に記載の有機電界発光素子。

【請求項19】 発光領域を有する有機層が陽極と陰極との間に設けられている有機電界発光素子において、前記有機層の少なくとも1部が、下記一般式[1]又は[II]で表されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含めた混合物からなり、かつこの混合物で構成された層の陰極側に接してホールブロッキング層が存在することを特徴とする、有機電界発光素子。

一般式 [ I ] :

 $Y^1$  –CH=CH– $X^1$  –CH=CH– $Y^2$ 

一般式「II]:

Y3 -CH=CH-X2

[但し、前記一般式 [I] において、 $X^1$ は下記一般式  $(1) \sim (4)$  のいずれかで表される基であり、

【化6】

1 1

$$R^4 \longrightarrow R^3 \longrightarrow R^2 \longrightarrow R^1 \longrightarrow R^{10} \longrightarrow$$

(但し、前記一般式  $(1) \sim (4)$  中の $R^1 \sim R^8$ 、 $R^9 \sim R$   $1^6$ 、 $R^{17} \sim R^{24}$ 、及び $R^{25} \sim R^{32}$ のそれぞれにおいて、少なくとも一つがハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、トリフルオロメチル基から選ばれた基であり、その他は水素原子、アルキル基、アリール基、アルコキシ基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基及びトリフルオロメチル基\*

\*から選ばれた基である。また、それらが同一であっても 異なっても良い。)

また、前記一般式 [II] において、 $X^2$  は下記一般式  $(5) \sim (17)$  のいずれかで表される基であり、 【化7】

(但し、前記一般式(5)~(17)において、 $R^{33}$ ~R ※れらが同一であっても異なっても良い。)  $^{141}$  は水素原子、又はハロゲン原子、ニトロ基、シアノ また、前記一般式[I]及び[II]中の $Y^1$ 、 $Y^2$ 及び $Y^3$  は水素 基及びトリフルオロメチル基から選ばれた基であり、そ $^{**}$ 50 原子、置換基を有しても良いアルキル基、又は下記一般

式(18)~(20)のいずれかで表される置換基を有 \*同一であっても異なっても良い。 しても良いアリール基から選ばれた基であり、それらが\* 【化8】

$$Z^{1} \xrightarrow{R^{145}} R^{144} R^{143}$$

$$Z^{1} \xrightarrow{R^{146}} R^{144} R^{143}$$

$$Z^{1} \xrightarrow{R^{146}} R^{144} R^{143}$$

$$Z^{1} \xrightarrow{R^{146}} R^{144} R^{143}$$

$$R^{146} \xrightarrow{R^{149}} R^{153} R^{156}$$

$$R^{151} R^{152}$$

$$R^{150} \xrightarrow{R^{151}} R^{152}$$

$$(18) \qquad (20)$$

(但し、前記一般式(18)中のZ<sup>1</sup>及びZ<sup>2</sup>は水素原子、置換基を有しても良いアルキル基、又は置換基を有しても良いアリール基から選ばれた基であり、それらが同一であっても異なっても良い。また、前記一般式(19)及び(20)において、R<sup>142</sup>~R<sup>158</sup>は水素原子、置換基を有しても良いアルキル基、置換基を有しても良いアリール基、置換基を有しても良いアリール基、置換基を有しても良いアリール基、置換基を有しても良いアリール基、置換基を有しても良いアリール基、置換基を有しても良いアリール基、置換基を有しても良いアルコキシ基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基及びトリフルオロメチル基から選ばれた基であってそれらが同一であっても異なっても良い。)]

【請求項20】 前記有機層が、ホール輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記有機層のうちの少なくとも電子輸送層が、前記一般式

[ I ] 又は [II] で表されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であり、かつ前記混合物層の陰極側に接して前記ホールブロッキング層が存在する、請求項19に記載の有機電界発光素子。

【請求項21】 前記有機層が、ホール輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記有機層のうちの少なくともホール輸送層が、前記一般式

[I] 又は [II] で表されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であり、かつ前記混合物層の陰極側に接して前記ホールブロッキング層が存在する、請求項19に記載の有機電界発光素子。

【請求項22】 前記有機層が、ホール輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記ホール輸送層が、前記一般式[I]又は[II]で表されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であり、かつ前記電子輸送層が、前記一般式[I]又は[II]で表されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であり、かつこの電子輸送性発光 40層の陰極側に接して前記ホールブロッキング層が存在する、請求項19に記載の有機電界発光素子。

【請求項23】 前記有機層が、ホール輸送層と発光層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記有機層のうちの少なくとも前記発光層が、前記一般式[I]] で表されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であり、かつ前記混合物層の陰極側に接して前記ホールブロッキング層が存在する、請求項19に記載の有機電界発光素子。

【請求項24】 前記混合物における前記アミノスチリ※50

10※ル化合物の割合が10~100重量%である、請求項1 9に記載の有機電界発光素子。

【請求項25】 発光領域を有する有機層が陽極と陰極との間に設けられている有機電界発光素子において、前記有機層の少なくとも1部が、下記構造式(21)-1~(21)-20で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物からなり、かつこの混合物で構成された層の陰極側に接してホールブロッキング層が存在することを特徴とする、有機電界発光素子。

【化9】

20

【請求項26】 前記有機層が、ホール輸送層と電子輸 送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記有 機層のうちの少なくとも電子輸送層が、前記構造式(2  $1)-1\sim (21)-20$ で示されるアミノスチリル化 合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であり、かつ前 記混合物層に接して陰極側に前記ホールブロッキング層 が存在する、請求項25に記載の有機電界発光素子。

(21)-18

【請求項27】 前記有機層が、ホール輸送層と電子輸 送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記有 機層のうちの少なくともホール輸送層が、前記構造式 (21)-1~(21)-20で示されるアミノスチリ ル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であり、か つ前記混合物層に接して陰極側に前記ホールブロッキン グ層が存在する、請求項25に記載の有機電界発光素 子。

【請求項28】 前記有機層が、ホール輸送層と電子輸 送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記ホ ール輸送層が、前記構造式(21)-1~(21)-2\*50 5に記載の有機電界発光素子。

\* 0で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を 含んだ混合物層であり、かつ前記電子輸送層が、前記構 造式(21)-1~(21)-20で示されるアミノス チリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であ り、かつこの電子輸送性発光層の陰極側に接して前記ホ ールブロッキング層が存在する、請求項25に記載の有 機電界発光素子。

40 【請求項29】 前記有機層が、ホール輸送層と発光層 と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有してお り、前記有機層のうちの少なくとも前記発光層が、前記 構造式(21)-1~(21)-20で示されるアミノ スチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であ り、かつ前記混合物層の陰極側に接して前記ホールブロ ッキング層が存在する、請求項25に記載の有機電界発 光素子。

【請求項30】 前記混合物における前記アミノスチリ ル化合物の割合が10~100重量%である、請求項2 【請求項31】 発光領域を有する有機層が陽極と陰極との間に設けられている有機電界発光素子において、前記有機層の少なくとも1部が、下記構造式(21)-1~(21)-20で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種と、600nm~700nmの範囲に発光極大を有する赤色発光色素とを含んだ混合物からなり、かつこの混合物で構成された層の陰極側に接してホールブロッキング層が存在することを特徴とする、有機電界発光素子。【化10】

F<sub>3</sub>C-
$$\bigcirc$$
-CHCH- $\bigcirc$ -CHCH- $\bigcirc$ -CF<sub>3</sub>

$$(21)-7$$

【請求項32】 前記有機層が、ホール輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記有機層のうちの少なくとも電子輸送層が、前記構造式(21)-1~(21)-20で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であり、かつ前記混合物層に接して陰極側に前記ホールブロッキング層が存在する、請求項31に記載の有機電界発光素子。

【請求項33】 前記有機層が、ホール輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記有機層のうちの少なくともホール輸送層が、前記構造式(21)-1~(21)-20で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であり、かつ前記混合物層に接して陰極側に前記ホールブロッキング層が存在する、請求項31に記載の有機電界発光素子。

【請求項34】 前記有機層が、ホール輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記ホール輸送層が、前記構造式  $(21)-1\sim(21)-2$ 0で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であり、かつ前記電子輸送層が、前記構造式  $(21)-1\sim(21)-2$ 0で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であり、かつこの電子輸送性発光層の陰極側に接して前記ホールブロッキング層が存在する、請求項31に記載の有機電界発光素子。

【請求項35】 前記有機層が、ホール輸送層と発光層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記有機層のうちの少なくとも前記発光層が、前記構造式(21)-1~(21)-20で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であり、かつ前記混合物層の陰極側に接して前記ホールブロッキング層が存在する、請求項31に記載の有機電界発光素子。

【請求項36】 前記混合物における前記アミノスチリル化合物の割合が10~100重量%である、請求項31に記載の有機電界発光素子。

#### 【発明の詳細な説明】

### [0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、発光領域を有する 有機層が陽極と陰極との間に設けられている有機電界発 光素子(有機EL素子)に関するものである。

## [0002]

【従来の技術】軽量で高効率のフラットパネルディスプレイが、例えばコンピュータやテレビジョンの画面表示用として盛んに研究、開発されている。 \*\*

\*【0003】まず、ブラウン管(CRT)は、輝度が高く、色再現性が良いため、現在ディスプレイとして最も 多く使われているが、嵩高く、重く、また消費電力も高いという問題がある。

0 【0004】また、軽量で高効率のフラットパネルディスプレイとして、アクティブマトリックス駆動などの液晶ディスプレイが商品化されている。しかしながら、液晶ディスプレイは、視野角が狭く、また、自発光でないため周囲が暗い環境下ではバックライトの消費電力が大きいことや、今後実用化が期待されている高精細度の高速ビデオ信号に対して十分な応答性能を有しない等の問題点がある。特に、大画面サイズのディスプレイを製造することは困難であり、そのコストが高い等の課題もある。

20 【0005】これに対する代替として、発光ダイオードを用いたディスプレイの可能性があるが、やはり製造コストが高く、また、1つの基板上に発光ダイオードのマトリックス構造を形成することが難しい等の問題があり、ブラウン管に取って代わる低価格のディスプレイ候補としては、実用化までの課題が大きい。

【0006】これらの諸課題を解決する可能性のあるフラットパネルディスプレイとして、最近、有機発光材料を用いた有機電界発光素子(有機EL素子)が注目されている。即ち、発光材料として有機化合物を用いることにより、自発光で、応答速度が高速であり、視野角依存性の無いフラットパネルディスプレイの実現が期待されている。

【0007】有機電界発光素子の構成は、透光性の正極と金属陰極との間に、電流の注入によって発光する発光材料を含む有機薄膜を形成したものである。C. W. Tang、S.A. VanSlyke等は Applied Physics Letters第51巻12号913~915頁(1987年)掲載の研究報告において、有機薄膜を正孔輸送性材料からなる薄膜と電子輸送性材料からなる薄膜との2層構造として、各々の電極から有機膜中に注入されたホールと電子が再結合することにより発光する素子構造を開発した(シングルへテロ構造の有機EL素子)。

【0008】この素子構造では、正孔輸送材料または電子輸送材料のいずれかが発光材料を兼ねており、発光は発光材料の基底状態と励起状態のエネルギギャップに対応した波長帯で起きる。このような2層構造とすることにより、大幅な駆動電圧の低減、発光効率の改善が行われた。

【0009】その後、C. Adachi 、S. Tokita 、T. Tsutsui、S. Saito等の Japanese Journal of Applied Phy

sics第27卷2号L269~L271頁(1988年) 掲載の研究報告に記載されているように、正孔輸送材 料、発光材料、電子輸送材料の3層構造(ダブルヘテロ 構造の有機EL素子)が開発され、更に、C.W. Tang、 S. A. VanSlyke、C. H. Chen等の Journal of Applied Physics 第65巻9号3610~3616頁(1989 年)掲載の研究報告に記載されているように、電子輸送 材料中に発光材料を含ませた素子構造などが開発され た。これらの研究により、低電圧で、高輝度の発光の可 能性が検証され、近年、研究開発が非常に活発に行われ 10 ている。

2.1

【0010】発光材料に用いる有機化合物は、その多様 性から、理論的には分子構造を変化させることによって 発光色を任意に変えることができるという利点があると 言える。従って、分子設計を施すことにより、フルカラ ーディスプレイに必要な色純度の良いR(赤)、G (緑)、B(青)の3色を揃えることは、無機物を用い た薄膜EL素子と比べて容易であると言える。

### [0011]

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、実際に は有機電界発光素子においても、解決しなければならな い問題がある。安定した高輝度の赤色発光素子の開発は 難しく、現在報告されている電子輸送材料として、トリ ス(8-キノリノール)アルミニウム(以下、A1 q3 と略称。) CDCM[4-ジシアノメチレン-6-(p)]ージメチルアミノスチリル)ー2ーメチルー4Hーピラ ン〕をドープした赤色発光の例 (Chem. Funct. Dyes, Pro c.Int.Symp.,2nd P.536(1993)等においても、最高輝 度、信頼性ともにディスプレイ材料としては満足の行く ものではない。

【0012】また、T.Tsutsui,D.U.Kim がInorganic an d Organic electroluminescence 会議(1996、Be rlin)で報告したBSB-BCNは、1000cd /m² 以上の高い輝度を実現しているが、フルカラーに 対応する赤色としての色度が完全なものとは言えない。 【0013】さらに高輝度で安定かつ色純度の高い赤色

発光素子の実現が、望まれているのが現状である。

【0014】また、特開平7-188649号(特願平 6-148798号) においては、特定のジスチリル化 合物を有機電界発光材料とすることを提案しているが、

目的の発光色が青色であり、赤色用ではない。一方、有 機電界発光素子の積層構造の中にホールと電子のエネル ギー的な閉じ込め構造を作ることによって発光層にてホ ールと電子が効率良く結合し、高い輝度および発光材料 独自の純粋な発光を得られることが報告されている(特 開平10-79297、特開平11-204258、特 開平11-204264、特開平11-204259 等)が、目的の発光色はやはり青色であり、赤色用では ない。

【0015】本発明の目的は、高輝度かつ安定な赤色又 は赤色様発光を有する有機電界発光素子を提供すること にある。

【0016】本発明の第二の目的は、本来高い蛍光収率 を有し、また熱安定性にも優れた本発明の化合物を含ん だ混合物を含有する有機電界発光素子において発光層で のホールと電子の再結合を促進し、さらに高輝度かつ高 効率な発光を呈する有機電界発光素子を提供することに ある。

## [0017]

【課題を解決するための手段】本発明は上記課題を解決 するために鋭意検討した結果、発光材料として特定のス チリル化合物と、効率良くエネルギーを伝達することが 可能な材料等との混合物を用いることによって、安定し た、高輝度のフルカラーディスプレイ実現に極めて有用 な高信頼性の赤色発光素子を提供できることを見出し、 本発明に到達したものである。

【0018】即ち、本発明は、発光領域を有する有機層 が陽極と陰極との間に設けられている有機電界発光素子 において、前記有機層の少なくとも1部が、下記一般式 [I]又は[II]で表されるアミノスチリル化合物の少 なくとも1種を含んだ混合物からなることを特徴とす る、有機電界発光素子に係わるものである。

### 一般式[I]:

 $\mathbf{Y}^{1}\operatorname{\mathsf{--CH=CH-X}^{1}-\mathrm{CH=CH-Y}^{2}}$ 

一般式[II]:

Y3 -CH=CH-X2

[但し、前記一般式[I]において、X1は下記一般式 (1)~(4)のいずれかで表される基であり、

#### 【化11】

40

(但し、前記一般式(1)~(4)中の $R^1$ ~ $R^8$ 、 $R^9$ ~ $R^{16}$ 、 $R^{17}$ ~ $R^{24}$ 、及び $R^{25}$ ~ $R^{32}$ のそれぞれにおいて、少なくとも一つがハロゲン原子(例えばフッ素、塩素など:以下、同様)、ニトロ基、シアノ基、トリフルオロメチル基から選ばれた基であり、その他は水素原子、アルキル基、アリール基、アルコキシ基、ハロゲン原子、ニト\*

\*ロ基、シアノ基及びトリフルオロメチル基から選ばれた 基である。また、それらが同一であっても異なっても良い。)

また、前記一般式 [II] において、 $X^2$  は下記一般式 (5)  $\sim$  (17) のいずれかで表される基であり、

【化12】

(但し、前記一般式(5)~(17)において、 $R^{33}$ ~R ※れらが同一であっても異なっても良い。)  $^{141}$ は水素原子、又はハロゲン原子、ニトロ基、シアノ また、前記一般式[I]及び[II]中の $Y^1$ 、 $Y^2$ 及び $Y^3$ は水素 基及びトリフルオロメチル基から選ばれた基であり、そ $^{**}$ 50 原子、置換基を有しても良いアルキル基、又は下記一般

式 (18) ~ (20) のいずれかで表される置換基を有 \* 同一であっても異なっても良い。 しても良いアリール基から選ばれた基であり、それらが\* 【化13】

(但し、前記一般式(18)中のZ¹及びZ²は水素原子、置換基を有しても良いアルキル基、又は置換基を有しても良いアリール基から選ばれた基であり、それらが同一であっても異なっても良い。また、前記一般式(19)及び(20)において、R¹⁴²~R¹⁵8は水素原子、置換基を有しても良いアルキル基、置換基を有しても良いアリール基、置換基を有しても良いアリール基、置換基を有しても良いアリール基、置換基を有しても良いアリール基、置換基を有しても良いアリール基、ご換基を有しても良いアリール表、ご換基を有しても良いアルコキシ基、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基及びトリフルオロメチル基から選ばれた基であって、それらが同一であっても異なっても良い。)〕

【0019】ここで、上記「混合物」とは、上記一般式 [I]で表されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種と、本発明の目的を達成するのに有利な性質を有するその他の化合物との混合物;又は上記一般式[II]で表されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種と、本発明の目的を達成するのに有利な性質を有するその他の化合物との混合物;更には上記一般式[I]で表されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種と、上記一般式[II]で表されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種と、上記一般式[II]で表されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種と、本発明の目的を達成するのに有利な性質を有するその他の化合物との混合物を意味する。

【0020】本発明は、上記一般式[I]又は[II]で表されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物を発光材料に用いるので、高輝度で安定な赤色発光が得られると共に、電気的、熱的或いは化学的にも安定性に優れた素子を提供できる。

【0021】本発明に用いる上記一般式[I]又は[II]で表されるアミノスチリル化合物を含む本発明に基づく混 40合物を形成するために使用可能な材料は、特に限定されるべきものではないが、例えば、本発明の上記一般式[I]又は[II]で表されるアミノスチリル化合物の他に、ホール輸送材料(例えば、芳香族アミン類等)、電子輸送材料(例えば、Alqs、ピラゾリン類等)、又は一般に赤色発光用ドーパントとして用いられる一連の化合物(DCM及びその類似化合物、ポルフィリン類、フタロシアニン類、ペリレン化合物、ナイルレッド、スクアリリウム化合物等)等が挙げられる。

【0022】上記例示したような各化合物を、上記一般※50

10※式[I]又は[II]で表されるアミノスチリル化合物を含

む、本発明に基づく混合物の形成材料として用いることによって、正孔輸送性能、電荷輸送性能又は発光性能の向上を図ることが可能となり、より高輝度で安定な赤色発光が得られると共に、電気的、熱的或いは化学的にも一層優れた素子とすることができる。

【0023】本発明に用いる上記一般式[I]又は[II]で表されるアミノスチリル化合物において、上記X<sup>1</sup>(上記一般式(1)~(4))及び上記X<sup>2</sup>(上記一般式(5)~(17))は、本発明に用いる発光材料が赤色発光を生じる上で重要であるが、例えばベンゼン環の数が増えるに従って、有機発光材料の発光波長は長波長側にシフトする傾向がある。

【0024】本発明の有機電界発光素子において、発光材料である上記一般式 [I]及び上記一般式 [II]で示されるアミノスチリル化合物は、例えば下記構造式(21)-1~(21)-20のような分子構造の少なくとも一種が使用可能である。

【0025】本発明者はまた、上記課題を解決するために鋭意検討した結果、特定のアミノスチリル化合物と、特定の赤色発光色素とを含んだ混合物で発光領域を有する有機層の少なくとも1部を構成した有機電界発光素子を作製し、更に高輝度及び高信頼性の素子を提供する本発明に到達したものである。

(21)-18

【0026】即ち、本発明は、発光領域を有する有機層が陽極と陰極との間に設けられている有機電界発光素子において、前記有機層の少なくとも1部が、上記構造式(21)-1~(21)-20で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種と、600nm~700nmの範囲に発光極大を有する赤色発光色素とを含んだ混合物からなることを特徴とする、有機電界発光素子に係わるものであ※50

※る。

(21)-19

【0027】上記赤色発光色素は、600nm~700nmの範囲 40 に発光極大を有する化合物ならば特に限定されるべきも のではないが、上述した如く、一般に赤色発光用ドーパ ントとして用いられる一連の化合物(DCM及びその類 似化合物、ポルフィン類、フタロシアニン類、ペリレン 化合物、ナイルレッド、スクアリリウム化合物等)など が挙げられる。

(21)-20

【0028】上記赤色発光色素を含むことによって、発 光性能をより上げることができ、一層高輝度で安定な赤 色発光を得ることができる。

【0029】本発明は、例えば、前記有機層が、ホール 輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有し ており、前記有機層のうちの少なくとも電子輸送層が、前記一般式[I]又は[II]で表されるアミノスチリル化合物、若しくは前記構造式(21)-1~(21)-20で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であってよい。

【0030】また、前記有機層が、ホール輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記有機層のうちの少なくともホール輸送層が、前記一般式[I]又は[II]で表されるアミノスチリル化合物、若しくは前記構造式(21)-1~(21)-20で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であってよい。

【0031】また、前記有機層が、ホール輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記ホール輸送層が、上記一般式 [I] 又は [II] で表されるアミノスチリル化合物、若しくは前記構造式 (21) -1~(21) -20で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であり、かつ前記電子輸送層が、上記一般式 [I] 又は [II] で表されるアミノスチリル化合物、若しくは前記構造式 (21) -1~(21) -20で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であってよい。

【0032】また、前記有機層が、ホール輸送層と発光層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記有機層のうちの少なくとも発光層が、前記一般式[I]又は[II]で表されるアミノスチリル化合物、若しくは前記構造式(21)-1~(21)-20で示されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であってよい。

【0033】さらに本発明は、前記混合物における前記 アミノスチリル化合物の割合が、10~100重量%で あることが好ましい。

【0034】また、本発明は、本来高い蛍光収率を有し、また熱安定性にも優れた上記の本発明の化合物を含んだ混合物を含有する有機電界発光素子において、発光層の陰極側にホール(正孔)ブロッキング層を置くことにより、発光層にてホールと電子の再結合が効率良く行われ、発光材料独自の純粋な発光が高輝度かつ高効率に得られる有機電界発光素子を提供するに至ったものである。

【0035】即ち、本発明はまた、発光領域を有する有機層が陽極と陰極との間に設けられている有機電界発光素子において、前記有機層の少なくとも1部が、前記一般式[I]又は[II]で表されるアミノスチリル化合物、若しくは前記構造式(21)-1~(21)-20で示されるアミノスチリル化合物(以下、同様)の少なくとも1種を含んだ混合物(この混合物には、前記した600m~700mに発光極大を有する赤色発光色素が含まれてよい。:以下、同様)からなり、かつこの混合物で構成された層の陰極側に接してホールブロッキング層が存50

在することを特徴とする、有機電界発光素子に係わるものである。

【0036】例えば、前記有機層が、ホール輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記有機層のうちの少なくとも電子輸送層が、前記一般式[I]又は[II]で表されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であり、かつ前記混合物層の陰極側に接して前記ホールブロッキング層が存在することが可能である。

【 0 0 3 7 】また、前記有機層が、ホール輸送層と電子 輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記 有機層のうちの少なくともホール輸送層が、前記一般式 [ I ] 又は [ II ] で表されるアミノスチリル化合物の少 なくとも1種を含んだ混合物層であり、かつ前記混合物 層の陰極側に接して前記ホールブロッキング層が存在す ることが可能である。

【0038】また、前記有機層が、ホール輸送層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記ホール輸送層が、前記一般式 [I] 又は [II] で表されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であり、かつ前記電子輸送層が、前記一般式 [I] 又は [II] で表されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であり、かつこの電子輸送性発光層の陰極側に接して前記ホールブロッキング層が存在することが可能である。

【0039】また、前記有機層が、ホール輸送層と発光層と電子輸送層とが積層された有機積層構造を有しており、前記有機層のうちの少なくとも前記発光層が、前記一般式[I]又は[II]で表されるアミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物層であり、かつ前記混合物層の陰極側に接して前記ホールブロッキング層が存在することが可能である。

【0040】さらに、前記混合物における前記アミノスチリル化合物の割合が $10\sim100$ 重量%であることが好ましい。

【0041】また、ホールブロッキング層に適した材料とは、次のようなエネルギー状態を有するものであることが望ましい。すなわち、ホールブロッキング層を形成する材料の最高占有分子軌道レベルが、ホールブロッキング層の陽極側に接する層を形成する材料の最高占有分子軌道レベルより低いエネルギーレベルにあること、なおかつホールブロッキング層を形成する材料の最低非占有分子軌道レベルが、ホールブロッキング層の陽極側に接する層を形成する材料の最低非占有分子軌道レベルより高いエネルギーレベルにあり、またホールブロッキング層の陰極側に接する層を形成する材料の最低非占有分子軌道レベルより低いエネルギーレベルにあることである。

【0042】このような材料として、特開平10-79 297、特開平11-204258、特開平11-20

4264、特開平11-204259等に示されたフェ ナントロリン誘導体が挙げられるが、上記のエネルギー レベルの条件を満たすものであれば、フェナントロリン 誘導体に限定されるものではない。

【0043】図1~図4及び図5~図8は、本発明に基 づく有機電界発光素子の例をそれぞれ示すものである。

【0044】図1は陰極3を発光光20が透過する透過 型有機電界発光素子Aであって、発光光20は保護層4 の側からも観測できる。図2は陰極3での反射光も発光 光20として得る反射型有機電界発光素子Bを示す。

【0045】図中、1は有機電界発光素子を形成するた めの基板であり、ガラス、プラスチック及び他の適宜の 材料を用いることができる。また、有機電界発光素子を 他の表示素子と組み合わせて用いる場合には、基板を共 用することもできる。2は透明電極(陽極)であり、I TO (Indium tin oxide) SnO2 等を使用できる。

【0046】また、5は有機発光層であり、上記したア ミノスチリル化合物を含んだ混合物を発光材料として含 有している。この発光層について、有機電界発光20を 得る層構成としては、従来公知の種々の構成を用いるこ とができる。後述するように、例えば、正孔輸送層と電 子輸送層のいずれかを構成する材料が発光性を有する場 合、これらの薄膜を積層した構造を使用できる。更に本 発明の目的を満たす範囲で電荷輸送性能を上げるため に、正孔輸送層と電子輸送層のいずれか若しくは両方 が、複数種の材料の薄膜を積層した構造、または、複数 種の材料を混合した組成からなる薄膜を使用するのを妨 げない。また、発光性能を上げるために、少なくとも1 種以上の蛍光性の材料を用いて、この薄膜を正孔輸送層 と電子輸送層の間に挟持した構造、更に少なくとも1種 以上の蛍光性の材料を正孔輸送層若しくは電子輸送層、 またはこれらの両方に含ませた構造を使用しても良い。 これらの場合には、発光効率を改善するために、正孔ま たは電子の輸送を制御するための薄膜をその層構成に含 ませることも可能である。

【0047】例えば上記の構造式(21)で例示したア ミノスチリル化合物は、電子輸送性能と正孔輸送性能の 両方を持つため、素子構成中、電子輸送層を兼ねた、上 記アミノスチリル化合物を含んだ混合物からなる発光層 としても、或いは正孔輸送層を兼ねた、上記アミノスチ リル化合物を含んだ混合物からなる発光層としても用い ることが可能である。また、このアミノスチリル化合物 を含んだ混合物を発光層として、電子輸送層と正孔輸送 層とで挟み込んだ構成とすることも可能である。図5及 び図6は、上記の構成に加えて、発光層5の陰極側に接 してフェナントロリン誘導体からなるホールブロッキン グ層21を設けたものである。

【0048】なお、図1及び図2、図5及び図6中、3

の活性な金属とAg、A1、In等の金属との合金、或 いはこれらを積層した構造を使用できる。透過型の有機 電界発光素子においては、陰極の厚さを調節することに より、用途に合った光透過率を得ることができる。ま た、図中の4は封止・保護層であり、有機電界発光素子 全体を覆う構造とすることにより、その効果が上がる。 気密性が保たれれば、適宜の材料を使用することができ る。また、8は電流注入用の駆動電源である。

【0049】本発明に基づく有機電界発光素子におい 10 て、有機層が、正孔輸送層と電子輸送層とが積層された 有機積層構造(シングルヘテロ構造)を有しており、正 孔輸送層又は電子輸送層の形成材料として前記アミノス チリル化合物を含んだ混合物が用いられてよい。或い は、有機層が、正孔輸送層と発光層と電子輸送層とが順 次積層された有機積層構造(ダブルヘテロ構造)を有し ており、発光層の形成材料として前記スチリル化合物を 含んだ混合物が用いられてよい。

【0050】このような有機積層構造を有する有機電界 発光素子の例を示すと、図3は、透光性の基板1上に、 透光性の陽極2と、正孔輸送層6と電子輸送層7とから なる有機層5 a と、陰極3とが順次積層された積層構造 を有し、この積層構造が保護膜4によって封止されてな る、シングルヘテロ構造の有機電界発光素子Cである。 図7では、電子輸送層7及び/又は正孔輸送層6の陰極 側に接してホールブロッキング層21が設けられてい

【0051】図3、図7に示すように発光層を省略した 層構成の場合には、正孔輸送層6と電子輸送層7の界面 から所定波長の発光20を発生する。これらの発光は基 板1側から観測される。

【0052】また、図4は、透光性の基板1上に、透光 性の陽極2と、正孔輸送層10と発光層11と電子輸送 層12とからなる有機層5bと、陰極3とが順次積層さ れた積層構造を有し、この積層構造が保護膜4によって 封止されてなる、ダブルヘテロ構造の有機電界発光素子 Dである。図8では、発光層11の陰極側に接してホー ルブロッキング層21が設けられている。

【0053】図4に示した有機電界発光素子において は、陽極2と陰極3の間に直流電圧を印加することによ り、陽極2から注入された正孔が正孔輸送層10を経 て、また陰極3から注入された電子が電子輸送層12を 経て、それぞれ発光層11に到達する。この結果、発光 層11においては電子/正孔の再結合が生じて一重項励 起子が生成し、この一重項励起子から所定波長の発光を 発生する。

【0054】上述した各有機電界発光素子C、Dにおい て、基板1は、例えば、ガラス、プラスチック等の光透 過性の材料を適宜用いることができる。また、他の表示 素子と組み合わせて用いる場合や、図3及び図4、図7 は陰極であり、電極材料としては、Li、Mg、Ca等 50 及び図8に示した積層構造をマトリックス状に配置する

33

場合等は、この基板を共用としてよい。また、素子C、 Dはいずれも、透過型、反射型のいずれの構造も採りう

【0055】また、陽極2は、透明電極であり、ITO (indium tin oxide) やSnO2 等が使用できる。この 陽極2と正孔輸送層6(又は正孔輸送層10)との間に は、電荷の注入効率を改善する目的で、有機物若しくは 有機金属化合物からなる薄膜を設けてもよい。なお、保 護膜4が金属等の導電性材料で形成されている場合は、 陽極2の側面に絶縁膜が設けられていてもよい。

【0056】また、有機電界発光素子Cにおける有機層 5aは、正孔輸送層6と電子輸送層7とが積層された有 機層であり、これらのいずれか又は双方に上記したアミ ノスチリル化合物を含んだ混合物が含有され、発光性の 正孔輸送層6又は電子輸送層7としてよい。有機電界発 光素子Dにおける有機層5bは、正孔輸送層10と上記 したアミノスチリル化合物を含んだ混合物を含有する発 光層11と電子輸送層12とが積層された有機層である が、その他、種々の積層構造を取ることができる。例え ば、正孔輸送層と電子輸送層のいずれか若しくは両方が 発光性を有していてもよい。

【0057】また、正孔輸送層において、正孔輸送性能 を向上させるために、複数種の正孔輸送材料を積層した 正孔輸送層を形成してもよい。

【0058】また、有機電界発光素子Cにおいて、発光 層は電子輸送性発光層7であってよいが、電源8から印 加される電圧によっては、正孔輸送層6やその界面で発 光される場合がある。同様に、有機電界発光素子Dにお いて、発光層は層11以外に、電子輸送層12であって もよく、正孔輸送層10であってもよい。発光性能を向 上させるために、少なくとも1種の蛍光性材料を用いた 発光層11を正孔輸送層と電子輸送層との間に挟持させ た構造であるのがよい。または、この蛍光性材料を正孔 輸送層又は電子輸送層、或いはこれら両層に含有させた 構造を構成してよい。このような場合、発光効率を改善 するために、正孔又は電子の輸送を制御するための薄膜 (ホールブロッキング層やエキシトン生成層など)をそ の層構成に含ませることも可能である。

【0059】また、陰極3に用いる材料としては、L i、Mg、Ca等の活性な金属とAg、Al、In等の 金属との合金を使用でき、これらの金属層が積層した構 造であってもよい。なお、陰極の厚みや材質を適宜選択 することによって、用途に見合った有機電界発光素子を 作製できる。

【0060】また、保護膜4は、封止膜として作用する ものであり、有機電界発光素子全体を覆う構造とするこ とで、電荷注入効率や発光効率を向上できる。なお、そ の気密性が保たれれば、アルミニウム、金、クロム等の 単金属又は合金など、適宜その材料を選択できる。

【0061】上記した各有機電界発光素子に印加する電 50

流は通常、直流であるが、パルス電流や交流を用いても よい。電流値、電圧値は、素子破壊しない範囲内であれ ば特に制限はないが、有機電界発光素子の消費電力や寿 命を考慮すると、なるべく小さい電気エネルギーで効率 良く発光させることが望ましい。

【0062】次に、図9は、本発明の有機電界発光素子 を用いた平面ディスプレイの構成例である。図示の如 く、例えばフルカラーディスプレイの場合は、赤

(R)、緑(G)及び青(B)の3原色を発光可能な有 10 機層5 (5a、5b)が、陰極3と陽極2との間に配さ れている。陰極3及び陽極2は、互いに交差するストラ イプ状に設けることができ、輝度信号回路14及びシフ トレジスタ内蔵の制御回路15により選択されて、それ ぞれに信号電圧が印加され、これによって、選択された 陰極3及び陽極2が交差する位置(画素)の有機層が発 光するように構成される。

【0063】即ち、図9は例えば8×3RGB単純マト リックスであって、正孔輸送層と、発光層および電子輸 送層のいずれか少なくとも一方とからなる積層体5を陰 極3と陽極2の間に配置したものである(図3及び図 7、又は図4及び図8参照)。陰極と陽極は、ともにス トライプ状にパターニングするとともに、互いにマトリ クス状に直交させ、シフトレジスタ内蔵の制御回路15 および14により時系列的に信号電圧を印加し、その交 叉位置で発光するように構成されたものである。かかる 構成のEL素子は、文字・記号等のディスプレイとして は勿論、画像再生装置としても使用できる。また陰極3 と陽極2のストライプ状パターンを赤(R)、緑 (G)、青(B)の各色毎に配し、マルチカラーあるい

構成することが可能となる。 [0064]

【実施例】次に本発明を実施例について具体的に説明す るが、本発明は以下の実施例に限定されるものではな 11

30 はフルカラーの全固体型フラットパネルディスプレイを

【0065】実施例1

本実施例は、一般式[1]のアミノスチリル化合物のう ち、下記構造式(21)-1のアミノスチリル化合物と 下記構造式の $\alpha$  - N P D ( $\alpha$  - ナフチルフェニルジアミ ン)との混合物を正孔輸送性発光層として用い、シング ルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。

[0066]

【化15】構造式(21)-1:

 $\alpha - NPD$ :

【0067】まず、真空蒸着装置中に、100nmの厚 さのITOからなる陽極が一表面に形成された30mm ×30mmのガラス基板をセッティングした。蒸着マス クとして、複数の2.0mm×2.0mmの単位開口を 有する金属マスクを基板に近接して配置し、真空蒸着法 により10<sup>-4</sup>Pa以下の真空下で上記構造式(21)- 10 スチリル化合物と電子輸送性材料であるAlgsを重量 1と正孔輸送材料であるα-NPDを重量比1:1で、 例えば50nmの厚さに正孔輸送層(兼発光層)として 成膜した。蒸着レートは各々0.1 nm/秒とした。 【0068】さらに、電子輸送層材料として下記構造式 のA1 qs (トリス (8-キノリノール) アルミニウ

[0069]

【化16】Alqs:

トは0.2nm/秒とした。



ム)を正孔輸送層に接して蒸着した。A 1 q3からなる

この電子輸送層の膜厚も例えば50mmとし、蒸着レー

【〇〇7〇】陰極材料としてはMgとAgの積層膜を採 用し、これも蒸着により、蒸着レート1 nm/秒として 例えば50nm (Mg膜)及び150nm (Ag膜)の 厚さに形成し、実施例1による図3に示したが如き有機 電界発光素子を作製した。

【0071】このように作製した実施例1の有機電界発 光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて 発光特性を評価した。発光色は赤色であり、分光測定を 行った結果、680nm付近に発光ピークを有するスペ クトルを得た。分光測定は、大塚電子社製のフォトダイ オードアレイを検出器とした分光器を用いた。また、電 圧-輝度測定を行ったところ、8Vで500cd/m<sup>2</sup> の輝度が得られた。

【0072】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲 気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかっ た。また、初期輝度100cd/m²で電流値を一定に 通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減す るまで250時間であった。

## 【0073】実施例2

本実施例は、一般式[1]のアミノスチリル化合物のう ち、上記構造式(21)-1のアミノスチリル化合物と A 1 q3との混合物を電子輸送性発光層として用い、シ ングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例であ る。

【0074】まず、真空蒸着装置中に、100nmの厚 さのITOからなる陽極が一表面に形成された30mm ×30mmのガラス基板をセッティングした。蒸着マス クとして、複数の2.0mm×2.0mmの単位開口を 有する金属マスクを基板に近接して配置し、真空蒸着法 により10-4 Pa以下の真空下で、上記構造式のα-N PDを例えば50nmの厚さに正孔輸送層として成膜し た。蒸着レートは0.1nm/秒とした。

【0075】さらに、上記構造式(21)-1のアミノ 比1:1で正孔輸送層に接して蒸着した。上記構造式 (21) −1のアミノスチリル化合物とA1 q3との混 合物からなる電子輸送層(兼発光層)の膜厚も例えば5 0 nmとし、蒸着レートは各々0.2 nm/秒とした。 【0076】陰極材料としてはMgとAgの積層膜を採 用し、これも蒸着により、蒸着レート1 nm/秒として 例えば50nm (Mg膜)及び150nm (Ag膜)の 厚さに形成し、実施例2による図3に示した如き有機電 界発光素子を作製した。

20 【0077】このように作製した実施例2の有機電界発 光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて 発光特性を評価した。発光色は赤色であり、実施例1と 同様に分光測定を行った結果、690mm付近に発光ピ ークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定 を行ったところ、8Vで600cd/m2の輝度が得ら れた。

【0078】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲 気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかっ た。また、初期輝度100cd/m²で電流値を一定に 30 通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減す るまで200時間であった。

【0079】実施例3

本実施例は、一般式[1]のアミノスチリル化合物のう ち、上記構造式(21)-1のアミノスチリル化合物と A1 q3との混合物を電子輸送性発光層として用い、ダ ブルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例であ

【0080】まず、真空蒸着装置中に、100nmの厚 さのITOからなる陽極が一表面に形成された30mm 40 ×30mmのガラス基板をセッティングした。蒸着マス クとして、複数の2.0mm×2.0mmの単位開口を 有する金属マスクを基板に近接して配置し、真空蒸着法 により10<sup>-4</sup> P α以下の真空下で、上記構造式のα-N PDを例えば30nmの厚さに正孔輸送層として成膜し た。蒸着レートは0.2 nm/秒とした。

【0081】さらに、発光材料として上記構造式(2 1)-1のアミノスチリル化合物と電子輸送性材料であ るA1 q3を重量比1:1で正孔輸送層に接して蒸着し た。上記構造式(21)-1のアミノスチリル化合物と 50 Alq3との混合物からなる発光層の膜厚も例えば30

nmとし、蒸着レートは各々0.2nm/秒とした。 【0082】さらに、電子輸送性材料として上記構造式の $A1q_3$ を発光層に接して蒸着した。  $A1q_3$ の膜厚を例えば30nmとし、蒸着レートは0.2nm/秒とした。

【0083】陰極材料としてはMgとAgの積層膜を採用し、これも蒸着により、蒸着レート1nm/秒として例えば50nm(Mg膜)及び150nm(Ag膜)の厚さに形成し、実施例3による図4に示したが如き有機電界発光素子を作製した。

【0084】このように作製した実施例3の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、分光測定を行った結果、690nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、8Vで800c d/m²の輝度が得られた。

【0085】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また初期輝度100cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光して強制劣化させた際、輝度が半減するまで500時間であった。

#### 【0086】実施例4

本実施例は、一般式[I]又は[II]のアミノスチリル化合物のうち、下記構造式(21)-8のアミノスチリル化合物と上記構造式(21)-1のアミノスチリル化合物との混合物を発光層として用い、ダブルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。

### [0087]

【化17】構造式(21)-8:

【0088】まず、真空蒸着装置中に、100nmの厚さのITOからなる陽極が一表面に形成された30mm×30mmのガラス基板をセッティングした。蒸着マスクとして、複数の2.0mm×2.0mmの単位開口を有する金属マスクを基板に近接して配置し、真空蒸着法により $10^{-4}$  Pa以下の真空下で上記構造式の $\alpha$  - NP 40 Dを例えば30nmの厚さに正孔輸送層として成膜した。蒸着レートは0.2nm/秒とした。

【0089】さらに、発光材料として上記構造式(21)-8のアミノスチリル化合物と上記構造式(21)-1のアミノスチリル化合物を重量比1:3で正孔輸送層に接して蒸着した。上記構造式(21)-8のアミノスチリル化合物と上記構造式(21)-1のアミノスチリル化合物との混合物からなる発光層の膜厚も例えば30nmとし、蒸着レートは上記構造式(21)-8の化合物は0.1nm/秒 上記構造式(21)-1の化合物は0.1nm/秒 上記構造式(21)-1の化合物は0.1nm/秒 上記構造式(21)-1の化合物は0.1nm/秒 上記構造式(21)-1の化合

物は0.3 nm/秒とした。

【0090】さらに、電子輸送性材料として上記構造式のA1 q3を発光層に接して蒸着した。A1 q3の膜厚を例えば30 nmとし、蒸着レートは0.2 nm/秒とした。

【0091】陰極材料としてはMgとAgの積層膜を採用し、これも蒸着により、蒸着レート1nm/秒として例えば50nm(Mg膜)及び150nm(Ag膜)の厚さに形成し、実施例4による図4に示したが如き有機10電界発光素子を作製した。

【0092】このように作製した実施例4の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、分光測定を行った結果、710nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、8Vで300c d/m²の輝度が得られた。

【0093】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また初期輝度50cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光して強制劣化させた際、輝度が半減するまで200時間であった。

#### 【0094】実施例5

本実施例は、一般式[I]又は[II]のアミノスチリル化合物のうち、下記構造式(21)-9のアミノスチリル化合物と下記構造式(21)-2のアミノスチリル化合物との混合物(重量比1:3)を発光層として用い、ダブルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。層構造、成膜法とも、実施例4に準拠して有機電界発光素子を作製した。

30 [0095]

【化18】構造式(21)-2:

【0096】このように作製した実施例5の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、分光測定を行った結果、750n mに発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、8Vで20c d  $/m^2$ の輝度が得られた。

○nmとし、蒸着レートは上記構造式(21)-8の化 【○○97】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲合物は○.1nm/秒、上記構造式(21)-1の化合 50 気下に1ケ月間放置したが、素子劣化は観察されなかっ

た。また初期輝度20cd/m2で電流値を一定に通電 して連続発光して強制劣化させた際、輝度が半減するま で100時間であった。

## 【0098】実施例6

本実施例は、一般式[I]又は[II]のアミノスチリル化合 物のうち、下記構造式(21)-10のアミノスチリル 化合物と下記構造式(21)-3のアミノスチリル化合 物との混合物(重量比1:3)を発光層として用い、ダ ブルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例であ る。層構造、成膜法とも、実施例4に準拠して有機電界 発光素子を作製した。

### [0099]

【化19】構造式(21)-3:

【0100】このように作製した実施例6の有機電界発 光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加え て、発光特性を評価した。発光色は橙色であり、分光測 定を行った結果、620 nmに発光ピークを有するスペ クトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、 8Vで500cd/m2の輝度が得られた。

【0101】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲 気下に1ケ月間放置したが、素子劣化は観察されなかっ た。また初期輝度100cd/m²で電流値を一定に通 電して連続発光して強制劣化させた際、輝度が半減する まで250時間であった。

## 【0102】実施例7

本実施例は、一般式[I]又は[II]のアミノスチリル化合 物のうち、下記構造式(21)-11のアミノスチリル 化合物と下記構造式(21)-4のアミノスチリル化合 物との混合物(重量比1:3)を発光層として用い、ダ 40 定を行った結果、615nmに発光ピークを有するスペ ブルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例であ る。層構造、成膜法とも、実施例4に準拠して有機電界 発光素子を作製した。

## [0103]

【化20】構造式(21)-4:

構造式(21)-11:

【0104】このように作製した実施例7の有機電界発 光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加え て、発光特性を評価した。発光色は赤色であり、分光測 定を行った結果、660nmに発光ピークを有するスペ クトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、 8Vで250cd/m2の輝度が得られた。

【0105】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲 気下に1ヶ月間放置したが、素子劣化は観察されなかっ た。また初期輝度100cd/m2で電流値を一定に通 電して連続発光して強制劣化させた際、輝度が半減する まで100時間であった。

### 【0106】実施例8

本実施例は、一般式[I]又は[II]のアミノスチリル化合 物のうち、下記構造式(21)-13のアミノスチリル 20 化合物と下記構造式(21)-5のアミノスチリル化合 物との混合物(重量比1:3)を発光層として用い、ダ ブルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例であ る。層構造、成膜法とも、実施例4に準拠して有機電界 発光素子を作製した。

## [0107]

30

【0108】このように作製した実施例8の有機電界発 光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加え て、発光特性を評価した。発光色は橙色であり、分光測 クトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、 8Vで $320cd/m^2$ の輝度が得られた。

【0109】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲 気下に1ヶ月間放置したが、素子劣化は観察されなかっ た。また初期輝度50cd/m<sup>2</sup>で電流値を一定に通電 して連続発光して強制劣化させた際、輝度が半減するま で150時間であった。

### 【0110】実施例9

本実施例は、一般式[I]又は[II]のアミノスチリル化合 50 物のうち、下記構造式(21)-14のアミノスチリル

化合物と下記構造式(21)-6のアミノスチリル化合物との混合物(重量比1:3)を発光層として用い、ダブルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。層構造、成膜法とも、実施例4に準拠して有機電界発光素子を作製した。

## [0111]

【化22】構造式(21)-6:

(21)-14

【0112】このように作製した実施例9の有機電界発 20 光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて、発光特性を評価した。発光色は赤色であり、分光測定を行った結果、670nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、8Vで230cd/m²の輝度が得られた。

【0113】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1ケ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また初期輝度100 c d/m²で電流値を一定に通電して連続発光して強制劣化させた際、輝度が半減するまで170時間であった。

#### 【0114】実施例10

本実施例は、一般式[I]又は[II]のアミノスチリル化合物のうち、下記構造式(21)-15のアミノスチリル化合物と下記構造式(21)-7のアミノスチリル化合物との混合物(重量比1:3)を発光層として用い、ダブルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。層構造、成膜法とも、実施例4に準拠して有機電界発光素子を作製した。

#### [0115]

構造式(21)-15:

(21)-15

【0116】このように作製した実施例10の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて、発光特性を評価した。発光色は赤色であり、分光測10 定を行った結果、630nmに発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、8Vで700cd/m²の輝度が得られた。

【0117】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1ケ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また初期輝度50 c d/m $^2$ で電流値を一定に通電して連続発光して強制劣化させた際、輝度が半減するまで300時間であった。

## 【0118】実施例11

本実施例は、一般式[I]又は[II]のアミノスチリル化合物のうち、下記構造式(21)-18のアミノスチリル化合物と上記構造式(21)-1のアミノスチリル化合物との混合物(重量比3:1)を発光層として用い、ダブルへテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。層構造、成膜法とも、実施例4に準拠して有機電界発光素子を作製した。

## [0119]

30

【化24】構造式(21)-18:

(21)-18

【0120】このように作製した実施例11の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて、発光特性を評価した。発光色は赤色であり、分光測定を行った結果、640n mに発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧一輝度測定を行ったところ、8 V で 450 c d / m $^2$  の輝度が得られた。

【0121】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲 40 気下に1ケ月間放置したが、素子劣化は観察されなかっ た。また初期輝度50cd/m²で電流値を一定に通電 して連続発光して強制劣化させた際、輝度が半減するま で170時間であった。

### 【0122】実施例12

本実施例は、一般式 [ I ] のアミノスチリル化合物のうち、下記構造式(21)-2のアミノスチリル化合物とA 1 q3との混合物を電子輸送性発光層として用い、シングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。層構造、成膜法とも、実施例2に準拠して有機電界50発光素子を作製した。

[0123]

【化25】構造式(21)-2:

43

【0124】このように作製した実施例12の有機電界 発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加え て発光特性を評価した。発光色は赤色であり、実施例1 と同様に分光測定を行った結果、720mm付近に発光 ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測 定を行ったところ、8Vで300cd/m2の輝度が得 られた。

【0125】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲 気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかっ た。また、初期輝度50cd/m²で電流値を一定に通 電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減する まで220時間であった。

## 【0126】実施例13

本実施例は、一般式[I]のアミノスチリル化合物のう ち、下記構造式(21)-3のアミノスチリル化合物と A1q3との混合物を電子輸送性発光層として用い、シ ングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例であ る。層構造、成膜法とも、実施例2に準拠して有機電界 発光素子を作製した。

[0127]

【化26】構造式(21)-3:

【0128】このように作製した実施例13の有機電界 発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加え て発光特性を評価した。発光色は赤色であり、実施例1 と同様に分光測定を行った結果、660mm付近に発光 ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測 定を行ったところ、8Vで500cd/m2の輝度が得 られた。

【0129】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲 気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかっ た。また、初期輝度100cd/m2で電流値を一定に 通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減す るまで300時間であった。

## 【0130】実施例14

本実施例は、一般式[I]のアミノスチリル化合物のう ち、下記構造式(21)-4のアミノスチリル化合物と A1q3との混合物を電子輸送性発光層として用い、シ

る。層構造、成膜法とも、実施例2に準拠して有機電界 発光素子を作製した。

[0131]

【化27】構造式(21)-4

【0132】このように作製した実施例14の有機電界 10 発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加え て発光特性を評価した。発光色は赤色であり、実施例1 と同様に分光測定を行った結果、650mm付近に発光 ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測 定を行ったところ、8Vで850cd/m2の輝度が得 られた。

【0133】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲 気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかっ た。また、初期輝度100cd/m²で電流値を一定に 通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減す 20 るまで200時間であった。

## 【0134】実施例15

本実施例は、一般式 [ I ] のアミノスチリル化合物のう ち、下記構造式(21)-5のアミノスチリル化合物と A1 q3との混合物を電子輸送性発光層として用い、シ ングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例であ る。層構造、成膜法とも、実施例2に準拠して有機電界 発光素子を作製した。

[0135]

30

【化28】構造式(21)-5:

【0136】このように作製した実施例15の有機電界 発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加え て発光特性を評価した。発光色は赤色であり、実施例1 と同様に分光測定を行った結果、630mm付近に発光 ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測 定を行ったところ、8Vで750cd/m2の輝度が得 40 られた。

【0137】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲 気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかっ た。また、初期輝度100cd/m²で電流値を一定に 通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減す るまで300時間であった。

## 【0138】実施例16

本実施例は、一般式[ I ] のアミノスチリル化合物のう ち、下記構造式(21)-6のアミノスチリル化合物と A1 q3との混合物を電子輸送性発光層として用い、シ ングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例であ 50 ングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例であ

る。層構造、成膜法とも、実施例2に準拠して有機電界 発光素子を作製した。

#### [0139]

【化29】構造式(21)-6:

【0140】このように作製した実施例16の有機電界 10 発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、実施例1と同様に分光測定を行った結果、700nm付近に発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、8Vで250cd/m²の輝度が得られた。

【0141】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度50cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで200時間であった。

### 【0142】実施例17

本実施例は、一般式 [ I ] のアミノスチリル化合物のうち、下記構造式 (21) -7のアミノスチリル化合物と A 1 q3との混合物を電子輸送性発光層として用い、シングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。層構造、成膜法とも、実施例2に準拠して有機電界発光素子を作製した。

#### [0143]

【化30】構造式(21)-7

このように作製した実施例17の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、実施例1と同様に分光測定を行った結果、665nm付近に発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、8Vで800cd/m $^2$ の輝度が得られた。

【0144】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度100cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで450時間であった。

## 【0145】実施例18

本実施例は、一般式 [II] のアミノスチリル化合物のうち、下記構造式(21)-8のアミノスチリル化合物とA1q3との混合物を電子輸送性発光層として用い、シングルへで見替告の有機需要発光素子を作製した例であ

る。層構造、成膜法とも、実施例2に準拠して有機電界 発光素子を作製した。

### [0146]

【化31】構造式(21)-8:

【0147】このように作製した実施例18の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、実施例1と同様に分光測定を行った結果、690nm付近に発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、8Vで700cd/m²の輝度が得られた。

【0148】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度100cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで500時間であった。

#### 【0149】実施例19

本実施例は、一般式 [II]のアミノスチリル化合物のうち、下記構造式(21)-9のアミノスチリル化合物とA1q3との混合物を電子輸送性発光層として用い、シングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。層構造、成膜法とも、実施例2に準拠して有機電界発光素子を作製した。

#### [0150]

【化32】構造式(21)-9:

【0151】このように作製した実施例19の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、実施例1と同様に分光測定を行った結果、660nm付近に発光40ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、8Vで500cd/m²の輝度が得られた。

【0152】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度100cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで450時間であった。

#### 【0153】<u>実施例20</u>

 $A 1 q_3$ との混合物を電子輸送性発光層として用い、シ 本実施例は、一般式 [II] のアミノスチリル化合物のうングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例であ 50 ち、下記構造式 (21) - 10 のアミノスチリル化合物

48

とA1 q3との混合物を電子輸送性発光層として用い、 シングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例で ある。層構造、成膜法とも、実施例2に準拠して有機電 界発光素子を作製した。

47

#### [0154]

【化33】構造式(21)-10:

【0155】このように作製した実施例20の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は橙色であり、実施例1と同様に分光測定を行った結果、610nm付近に発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧一輝度測定を行ったところ、8Vで750cd/m²の輝度が得られた。

【0156】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度100cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで500時間であった。

## 【0157】実施例21

本実施例は、一般式 [II] のアミノスチリル化合物のうち、下記構造式(21)-11のアミノスチリル化合物とA1q3との混合物を電子輸送性発光層として用い、シングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。層構造、成膜法とも、実施例2に準拠して有機電界発光素子を作製した。

## [0158]

得られた。

【化34】構造式(21)-11:

(21)-11

【0159】このように作製した実施例21の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は橙色であり、実施例1と同様に分光測定を行った結果、620nm付近に発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧一輝度測定を行ったところ、8Vで1200cd/m²の輝度が

【0160】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度100cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで660時間であった。

## 【0161】<u>実施例22</u>

本実施例は、一般式 [II] のアミノスチリル化合物のうち、下記構造式(21)-13のアミノスチリル化合物とA1 q3との混合物を電子輸送性発光層として用い、シングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。層構造、成膜法とも、実施例2に準拠して有機電界発光素子を作製した。

[0162]

【化35】構造式(21)-13:

(21)-13

【0163】このように作製した実施例22の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は橙色であり、実施例1と同様に分光測定を行った結果、590nm付近に発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、8Vで1500cd/m²の輝度が20 得られた。

【0164】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度100cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで500時間であった。

## 【 O 1 6 5 】<u>実施例 2 3</u>

本実施例は、一般式 [II]のアミノスチリル化合物のうち、下記構造式(21)-14のアミノスチリル化合物とAlqsとの混合物を電子輸送性発光層として用い、30シングルへテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。層構造、成膜法とも、実施例2に準拠して有機電界発光素子を作製した。

[0166]

【化36】構造式(21)-14:

(21)-14

【0167】このように作製した実施例23の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、実施例1と同様に分光測定を行った結果、630nm付近に発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧一輝度測定を行ったところ、8Vで1100cd/m²の輝度が得られた。

【0168】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲 気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかっ 50 た。また、初期輝度100cd/m²で電流値を一定に

49 通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで500時間であった。

### 【0169】実施例24

本実施例は、一般式 [II] のアミノスチリル化合物のうち、下記構造式(21)-15のアミノスチリル化合物とA 1  $q_3$ との混合物を電子輸送性発光層として用い、シングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。層構造、成膜法とも、実施例 2 に準拠して有機電界発光素子を作製した。

## [0170]

【化37】構造式(21)-15:

 $(21) \cdot 15$ 

【0171】このように作製した実施例24の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、実施例1と同様に分光測定を行った結果、630nm付近に発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、8Vで700cd/m²の輝度が得られた。

【0172】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度100cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで600時間であった。

## 【0173】実施例25

本実施例は、一般式 [II] のアミノスチリル化合物のうち、下記構造式(21)-18のアミノスチリル化合物とA1 q3との混合層を電子輸送性発光層として用い、シングルヘテロ構造の有機電界発光素子を作製した例である。層構造、成膜法とも、実施例2に準拠して有機電界発光素子を作製した。

## [0174]

【化38】構造式(21)-18:

(21)-18

【0175】このように作製した実施例25の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は橙色であり、実施例1と同様に分光測定を行った結果、580nm付近に発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度測定を行ったところ、8Vで900cd/m²の輝度が得られた。

【0176】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度100cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで450時間であった。

### 【0177】実施例26

本実施例は、一般式 [I]のアミノスチリル化合物のうち、上記構造式(21)-1のアミノスチリル化合物と上記構造式の $\alpha-NPD$ ( $\alpha-$ ナフチルフェニルジアミ10ン)の混合物を正孔輸送性発光層として用い、図7に示した如き有機電界発光素子を作製した例である。

【0178】まず、真空蒸着装置中に、100nmの厚さのITOからなる陽極が一表面に形成された30mm×30mmのガラス基板をセッティングした。蒸着マスクとして複数の2.0mm×2.0mmの単位開口を有する金属マスクを基板に近接して配置し、真空蒸着法により10-4Pa以下の真空下で上記構造式(21)-1のアミノスチリル化合物と正孔輸送材料である $\alpha$ -NPDを重量比1:1で、例えば50nmの厚さに正孔輸送20層(兼発光層)として成膜した。蒸着レートは各 $\alpha$ 0.1nm/秒とした。

【0179】さらに、ホールブロッキング層材料として下記構造式のバソクプロインを正孔輸送層に接して蒸着した。バソクプロインからなるこのホールブロッキング層の膜厚は例えば15 nmとし、蒸着レートは0.1 nm/秒とした。

【0180】さらに、電子輸送層材料として上記構造式のA1q3(トリス(8-キノリノール)アルミニウム)をホールブロッキング層に接して蒸着した。A1q303からなるこの電子輸送層の膜厚も例えば50nmとし、蒸着レートは0.2nm/秒とした。

#### [0181]

【化39】バソクプロイン:

【0182】陰極材料としてはMgとAgの積層膜を採 40 用し、これも蒸着により、蒸着レート1nm/秒として 例えば50nm(Mg膜)および150nm(Ag膜) の厚さに形成し、実施例26による図7に示した如き有 機電界発光素子を作製した。

【0183】このように作製した実施例26の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、分光測定を行った結果、720nm付近に発光ピークを有するスペクトルを得た。分光測定は、大塚電子社製のフォトダイオードアレイを検出器とした分光器を用いた。また、

50 電圧-輝度測定を行ったところ、8Vで250cd/m

2の輝度が得られた。

【0184】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度50cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減するまで200時間であった。

51

#### 【0185】実施例27

本実施例は、一般式[I]のアミノスチリル化合物のうち、上記構造式(21)-1のアミノスチリル化合物とA1  $q_3$ との混合物を電子輸送性発光層として用い、図8に示した如き有機電界発光素子を作製した例である。【0186】まず、真空蒸着装置中に、100 n mの厚さのITOからなる陽極が一表面に形成された30 m m×30 m mのガラス基板をセッティングした。蒸着マスクとして、複数の2.0 m m×2.0 m mの単位開口を有する金属マスクを基板に近接して配置し、真空蒸着法により10-4 P a 以下の真空下で、上記構造式の $\alpha$ -NPDを例えば30 n m の厚さに正孔輸送層として成膜した。蒸着レートは0.2 n m / 秒とした。

【0187】さらに、発光材料として上記構造式(21)-1のアミノスチリル化合物と電子輸送性材料である $A1q_3$ を重量比1:1で正孔輸送層に接して蒸着した。上記構造式(21)-1のアミノスチリル化合物と $A1q_3$ との混合物からなる発光層の膜厚も例えば30nmとし、蒸着レートは各q0.2nm/秒とした。

【0188】さらに、ホールブロッキング層として上記構造式のバソクプロインを発光層に接して蒸着した。バソクプロインからなるこのホールブロッキング層の膜厚は例えば15nmとし、蒸着レートは0.1nm/秒とした。

【0189】さらに、電子輸送層材料として上記構造式のA1q3をホールブロッキング層に接して蒸着した。A1q3からなるこの電子輸送層の膜厚も例えば30nmとし、蒸着レートは0.2nm/秒とした。

【0190】陰極材料としてはMgとAgの積層膜を採用し、これも蒸着により、蒸着レート1nm/秒として例えば50nm(Mg膜)及び150nm(Ag膜)の厚さに形成し、実施例27による図8に示したが如き有機電界発光素子を作製した。

【0191】このように作製した実施例27の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、実施例26と同様に分光測定を行った結果、720nm付近に発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧一輝度測定を行ったところ、8Vで220cd/m²の輝度が得られた。

【0192】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度50cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減する

まで350時間であった。

【0193】実施例28

本実施例は、一般式[I]又は[II]のアミノスチリル化合物のうち、上記構造式(21)-8のアミノスチリル化合物と上記構造式(21)-1のアミノスチリル化合物との混合物を発光層として用い、図8に示した如き有機電界発光素子を作製した例である。

【0194】まず、真空蒸着装置中に、100nmの厚さのITOからなる陽極が一表面に形成された30mm10 ×30mmのガラス基板をセッティングした。蒸着マスクとして、複数の2.0mm×2.0mmの単位開口を有する金属マスクを基板に近接して配置し、真空蒸着法により $10^{-4}$  Pa以下の真空下で上記構造式の $\alpha-N$  PDを例えば30nmの厚さに正孔輸送層として成膜した。蒸着レートは0.2nm/秒とした。

【 0 1 9 5 】 さらに、発光材料として上記構造式(2 1) -8のアミノスチリル化合物と上記構造式(2 1) -1のアミノスチリル化合物を重量比1:3で正孔輸送層に接して蒸着した。上記構造式(2 1) -8のアミノスチリル化合物と上記構造式(2 1) -1のアミノスチリル化合物との混合物からなる発光層の膜厚も例えば30 n m とし、蒸着レートは上記構造式(2 1) -8の化合物は0.1 n m/秒、上記構造式(2 1) -1の化合物は0.3 n m/秒とした。

【0196】さらに、ホールブロッキング層として上記構造式のバソクプロインを発光層に接して蒸着した。バソクプロインからなるこのホールブロッキング層の膜厚は例えば15nmとし、蒸着レートは0.1nm/秒とした。

30 【0197】さらに、電子輸送性材料として上記構造式のA1q3を発光層に接して蒸着した。A1q3の膜厚を例えば30nmとし、蒸着レートは0.2nm/秒とした。

【0198】陰極材料としてはMgとAgの積層膜を採用し、これも蒸着により、蒸着レート1nm/秒として例えば50nm(Mg膜)及び150nm(Ag膜)の厚さに形成し、実施例28による図8に示したが如き有機電界発光素子を作製した。

【0199】このように作製した実施例28の有機電界発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加えて発光特性を評価した。発光色は赤色であり、実施例26と同様に分光測定を行った結果、710nm付近に発光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧一輝度測定を行ったところ、8Vで250cd/m²の輝度が得られた。

【0200】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかった。また、初期輝度50cd/m²で電流値を一定に通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減する50まで330時間であった。

### 【0201】実施例29

本実施例は、一般式[I]又は[II]の上記アミノスチリ ル化合物のうち、上記構造式(21)-9のアミノスチ リル化合物と上記構造式(21)-2のアミノスチリル 化合物との混合物(重量比1:3)を電子輸送性発光層 として用いた有機電界発光素子を作製した例である。層 構造、成膜法とも実施例28に準拠して有機電界発光素 子を作製した。

【0202】このように作製した実施例29の有機電界 発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加え て発光特性を評価した。発光色は赤色であり、実施例2 6と同様に分光測定を行った結果、750nm付近に発 光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度 測定を行ったところ、8Vで15cd/m2の輝度が得 Sht.

【0203】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲 気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかっ た。また、初期輝度20cd/m²で電流値を一定に通 電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減する まで150時間であった。

### 【0204】<u>実施例30</u>

本実施例は、一般式[I]又は[II]の上記アミノスチリ ル化合物のうち、上記構造式(21)-10のアミノス チリル化合物と上記構造式(21)-3のアミノスチリ ル化合物との混合物(重量比1:3)を電子輸送性発光 層として用いた有機電界発光素子を作製した例である。 層構造、成膜法とも実施例28に準拠して有機電界発光 素子を作製した。

【0205】このように作製した実施例30の有機電界 発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加え て発光特性を評価した。発光色は橙色であり、実施例2 6と同様に分光測定を行った結果、620nm付近に発 光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧一輝度 測定を行ったところ、8Vで450cd/m2の輝度が 得られた。

【0206】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲 気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかっ た。また、初期輝度100cd/m²で電流値を一定に 通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減す るまで350時間であった。

#### 【0207】実施例31

本実施例は、一般式[I]又は[II]の上記アミノスチリ ル化合物のうち、上記構造式(21)-11のアミノス チリル化合物と上記構造式(21)-4のアミノスチリ ル化合物との混合物(重量比1:3)を電子輸送性発光 層として用いた有機電界発光素子を作製した例である。 層構造、成膜法とも実施例28に準拠して有機電界発光 素子を作製した。

【0208】このように作製した実施例31の有機電界 発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加え 50 るまで220時間であった。

54

て発光特性を評価した。発光色は赤色であり、実施例2 6と同様に分光測定を行った結果、660nm付近に発 光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度 測定を行ったところ、8Vで200cd/m2の輝度が 得られた。

【0209】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲 気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかっ た。また、初期輝度100cd/m²で電流値を一定に 通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減す るまで150時間であった。

## 【0210】実施例32

本実施例は、一般式[I]又は[II]の上記アミノスチリ ル化合物のうち、上記構造式(21)-13のアミノス チリル化合物と上記構造式(21)-5のアミノスチリ ル化合物との混合物(重量比1:3)を電子輸送性発光 層として用いた有機電界発光素子を作製した例である。 層構造、成膜法とも実施例28に準拠して有機電界発光 素子を作製した。

【0211】このように作製した実施例32の有機電界 20 発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加え て発光特性を評価した。発光色は橙色であり、実施例2 6と同様に分光測定を行った結果、615nm付近に発 光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度 測定を行ったところ、8Vで280cd/m2の輝度が 得られた。

【0212】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲 気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかっ た。また、初期輝度100cd/m²で電流値を一定に 通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減す るまで250時間であった。

#### 【0213】実施例33

本実施例は、一般式[I]又は[II]の上記アミノスチリ ル化合物のうち、上記構造式(21)-14のアミノス チリル化合物と上記構造式(21)-6のアミノスチリ ル化合物との混合物(重量比1:3)を電子輸送性発光 層として用いた有機電界発光素子を作製した例である。 層構造、成膜法とも実施例28に準拠して有機電界発光 素子を作製した。

【0214】このように作製した実施例33の有機電界 40 発光素子に、窒素雰囲気下で順バイアス直流電圧を加え て発光特性を評価した。発光色は赤色であり、実施例2 6と同様に分光測定を行った結果、670nm付近に発 光ピークを有するスペクトルを得た。また、電圧-輝度 測定を行ったところ、8Vで210cd/m²の輝度が 得られた。

【0215】この有機電界発光素子を作製後、窒素雰囲 気下に1カ月間放置したが、素子劣化は観察されなかっ た。また、初期輝度100cd/m²で電流値を一定に 通電して連続発光し、強制劣化させた際、輝度が半減す

[0216]

【発明の作用効果】本発明の有機電界発光素子によれ ば、発光領域を有する有機層が陽極と陰極との間に設け られている有機電界発光素子において、前記有機層の少 なくとも1部が、前記一般式[I]又は[II]で表されるア ミノスチリル化合物の少なくとも1種を含んだ混合物か らなるので、高輝度で安定な赤色又は赤色様発光を有す る有機電界発光素子を提供することが可能となる。

55

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明に基づく有機電界発光素子の一例の要部 10 面ディスプレイの構成図である。 概略断面図である。

【図2】同、有機電界発光素子の他の例の要部概略断面 図である。

【図3】同、有機電界発光素子の他の例の要部概略断面 図である。

【図4】同、有機電界発光素子の他の例の要部概略断面 図である。

【図5】同、有機電界発光素子の他の例の要部概略断面 図である。

【図6】同、有機電界発光素子の他の例の要部概略断面 図である。

【図7】同、有機電界発光素子の他の例の要部概略断面 図である。

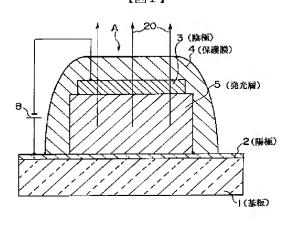
【図8】同、有機電界発光素子の更に他の例の要部概略 断面図である。

【図9】同、有機電界発光素子を用いたフルカラーの平

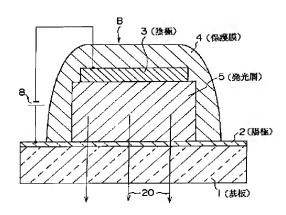
#### 【符号の説明】

1…基板、2…透明電極(陽極)、3…陰極、4…保護 膜、5、5a、5b…有機層、6…正孔輸送層、7…電 子輸送層、8…電源、10…正孔輸送層、11…発光 層、12…電子輸送層、14…輝度信号回路、15…制 御回路、20…発光光、21…ホール(正孔)ブロッキ ング層、A、B、C、D…有機電界発光素子

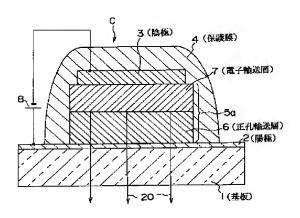
【図1】



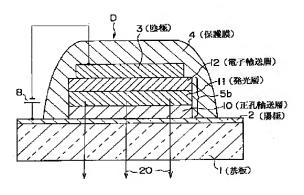
【図2】

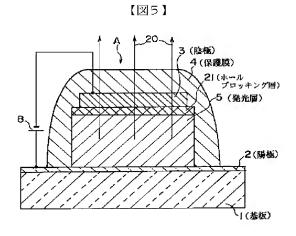


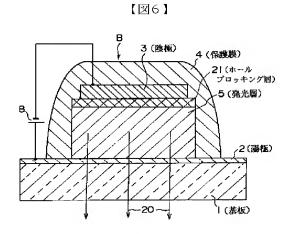
【図3】

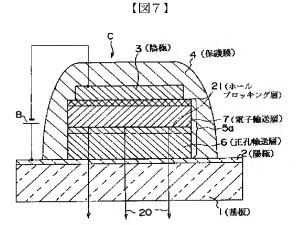


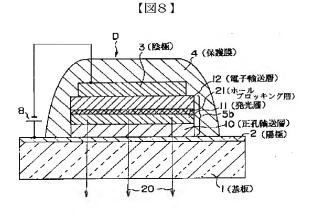
【図4】

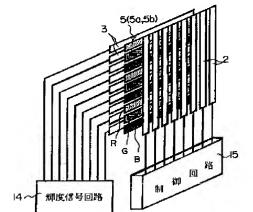












【図9】

フロントページの続き

 (51) Int. Cl.7
 識別記号
 F I
 デーマコード (参考)

 H 0 5 B
 33/22
 B

(72)発明者 田村 眞一郎 (72)発明者 植田 尚之 東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニ 東京都品川区北品川6丁目7番35号 ソニ ー株式会社内 「子ターム(参考) 3K007 AB04 AB11 CA01 CB01 CB03 DA01 DB03 EB00